

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-228222  
(43)Date of publication of application : 24.08.1999

(51)Int.Cl.

C04B 35/46  
H01B 3/02  
H01B 3/12

(21)Application number : 10-313339  
(22)Date of filing : 04.11.1998

(71)Applicant : MURATA MFG CO LTD  
(72)Inventor : SUGIMOTO YASUTAKA  
SUNAHARA HIROBUMI  
SUGO KIMIHIDE  
TAKAGI HIROSHI

(30)Priority

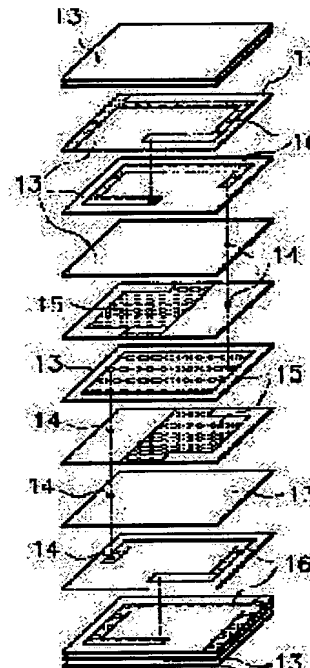
Priority number : 09341491 Priority date : 11.12.1997 Priority country : JP

## (54) DIELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND CERAMIC ELECTRONIC PART USING THE SAME

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a dielectric ceramic composition with high dielectric constant and Q-value and good temperature stability, also sinterable at relatively low temperatures, and to obtain ceramic electronic parts using the above composition.

**SOLUTION:** This dielectric ceramic composition comprises a 1st ceramic composition of BaO-TiO<sub>2</sub>-ReO<sub>3/2</sub> base (Re is a rare earth element) and a glass composition which is composed of 13-50 wt.% of SiO<sub>2</sub>, 3-30 wt.% of B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 40-80 wt.% of an alkaline earth metal oxide and 0.5-10 wt.% of Li<sub>2</sub>O.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 25.07.2000  
[Date of sending the examiner's decision of rejection] 15.04.2003  
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]  
[Date of final disposal for application]  
[Patent number]  
[Date of registration]  
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]  
[Date of requesting appeal against examiner's decision of

rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 1 1 - 2 2 8 2 2 2

(43) 公開日 平成 11 年 (1999) 8 月 24 日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

識別記号

F I

C 0 4 B 35/46

C 0 4 B 35/46

D

H 0 1 B 3/02

H 0 1 B 3/02

A

3/12 3 0 3

3/12 3 0 3

審査請求 未請求 請求項の数 8

O L

(全 1 4 頁)

(21) 出願番号 特願平 10-313339

(71) 出願人 000006231

株式会社村田製作所

(22) 出願日 平成 10 年 (1998) 11 月 4 日

京都府長岡京市天神二丁目 26 番 10 号

(31) 優先権主張番号 特願平 9-341491

(72) 発明者 杉本 安隆

京都府長岡京市天神二丁目 26 番 10 号 株式会社村田製作所内

(32) 優先日 平 9 (1997) 12 月 11 日

(72) 発明者 砂原 博文

京都府長岡京市天神二丁目 26 番 10 号 株式会社村田製作所内

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(72) 発明者 須郷 公英

京都府長岡京市天神二丁目 26 番 10 号 株式会社村田製作所内

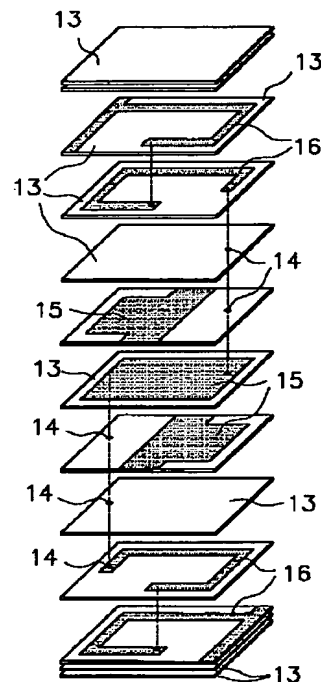
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 誘電体磁器組成物及びそれを用いたセラミック電子部品

(57) 【要約】

【課題】 誘電率や Q 値が高く、又温度安定性が良く、しかも比較的低温で焼結可能な誘電体磁器組成物及びそれを用いたセラミック電子部品を提供すること。

【解決手段】  $BaO-TiO_2-ReO_{3/2}$  (但し、Re は希土類元素) 系の第 1 磁器組成物とガラス組成物の混合体からなり、ガラス組成物は 13 ~ 50 重量%の  $SiO_2$ 、3 ~ 30 重量%の  $B_2O_3$ 、40 ~ 80 重量%のアルカリ土類酸化物、及び 0.5 ~ 10 重量%の  $Li_2O$  を混合してなる誘電体磁器組成物。及び、この誘電体磁器組成物を用いたセラミック電子部品。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】  $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$  (但し、 $\text{Re}$  は希土類元素) 系の第 1 磁器組成物とガラス組成物の混合体からなり、該ガラス組成物は 13~50 重量%の  $\text{SiO}_2$ 、3~30 重量%の  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、40~80 重量%のアルカリ土類酸化物、及び 0.5~10 重量%の  $\text{Li}_2\text{O}$  からなることを特徴とする、誘電体磁器組成物。

【請求項 2】 副成分として、 $\text{CuO}$  を含有していることを特徴とする、請求項 1 記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 3】 前記  $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$  系の第 1 磁器組成物は、 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{ReO}_{3/2}$  (但し、 $x$ 、 $y$ 、 $z$  はモル%であり、 $5 \leq x \leq 15$ 、 $52$ 、 $5 \leq y \leq 70$ 、 $15 \leq z \leq 42$ 、 $5$ 、 $x+y+z=100$ ) で表わされ、該第 1 磁器組成物 100 重量部に対して、20 重量部以下の  $\text{PbO}$  を含有していることを特徴とする、請求項 1 又は 2 記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 4】 前記ガラス組成物に含まれるアルカリ土類酸化物は、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$  及び  $\text{MgO}$  から選ばれる少なくとも 1 種と、 $\text{BaO}$  からなり、かつこれらの比率は、 $\text{SrO}$  が 35 重量%以下、 $\text{CaO}$  が 35 重量%以下、 $\text{MgO}$  が 20 重量%以下、及び  $\text{BaO}$  が 40~95 重量%の範囲内にあることを特徴とする、請求項 1 又は 2 記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 5】 前記第 1 磁器組成物は 80~95 重量%であり、前記ガラス組成物は 5~20 重量%であり、前記  $\text{CuO}$  は 3 重量%以下であることを特徴とする、請求項 2~4 のうちいずれかに記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 6】  $\text{TiO}_2$ 、 $\text{CaTiO}_3$ 、 $\text{SrTiO}_3$  及び  $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の第 2 磁器組成物を含有していることを特徴とする、請求項 1~4 のうちいずれかに記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 7】 前記第 1 磁器組成物は 50~95 重量%であり、前記ガラス組成物は 5~20 重量%であり、前記  $\text{CuO}$  は 3 重量%以下であり、前記第 2 磁器組成物は 30 重量%以下であることを特徴とする、請求項 6 に記載の誘電体磁器組成物。

【請求項 8】 請求項 1 乃至請求項 7 に記載の誘電体磁器組成物を誘電体セラミック層として利用することを特徴とする、セラミック電子部品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ガラス-セラミック複合材料である誘電体磁器組成物、及び、該誘電体磁器組成物を、マイクロ波用共振器、LC フィルタ、積層コンデンサや多層回路基板における誘電体セラミック層に用いたセラミック電子部品に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、マイクロ波用の共振器や LC フィ

ルタなどの電子部品の小型化を図るため、空洞共振器を高い比誘電率を有するセラミック誘電体に置き換える努力がなされてきた。これは誘電体の比誘電率を  $\epsilon$  とすると、誘電体内部では電磁波の持つ波長が自由空間での波長の  $1/\epsilon^{1/2}$  に短縮される効果を利用し、共振器やフィルタなどの小型化を図るものである。

【0003】ところが、誘電体共振器として使用できる温度係数を持つセラミック誘電体材料の比誘電率  $\epsilon$  は、これまでのところ 100 以下に限定されていて、最近のさらなる小型化の要求には応えられなくなってきた。

【0004】セラミック誘電体材料の比誘電率  $\epsilon$  の値の制約の下でこの要求に応えるために、従来よりマイクロ波回路で知られる LC 共振器を用いる方法は有効であり、積層コンデンサや多層基板などで実用化されている積層工法を LC 回路の構成に応用すれば、より一層の小型化と高い信頼性を合わせもつ電子部品を作製することができる。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、積層工法によってマイクロ波帯域で高い Q 値を持つ LC 共振器を得るためには、積層コンデンサや多層回路基板に内蔵する内部電極の導電率が高いことが必要とされる。すなわち、誘電体や多層回路基板と同時焼成される内部電極には金、銀又は銅などの導電率の高い金属材料を使用することが必要となる。このため、誘電体材料は、高誘電率、高 Q 値、高い温度安定性に加えて融点の低い金属材料からなる内部電極と同時に焼成できる低温焼結材料であることが必要となるが、このような要求をすべて満たす誘電体材料は見出されていない。

【0006】本発明は、上述の従来の欠点に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、比誘電率や Q 値が高く、又温度安定性が良く、しかも比較的低温で焼結可能な誘電体磁器組成物を提供することにある。

【0007】本発明のさらに他の目的は、高周波特性に優れ、小型化可能なセラミック電子部品を提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するため、本発明の誘電体磁器組成物は、 $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$  (但し、 $\text{Re}$  は希土類元素) 系の第 1 磁器組成物とガラス組成物の混合体からなり、該ガラス組成物は 13~50 重量%の  $\text{SiO}_2$ 、3~30 重量%の  $\text{B}_2\text{O}_3$ 、40~80 重量%のアルカリ土類酸化物、及び 0.5~10 重量%の  $\text{Li}_2\text{O}$  からなることを特徴とする。なお、希土類元素  $\text{Re}$  としては、 $\text{Sc}$ 、 $\text{Y}$ 、 $\text{La}$ 、 $\text{Ce}$ 、 $\text{Pr}$ 、 $\text{Nd}$ 、 $\text{Pm}$ 、 $\text{Sm}$ 、 $\text{Eu}$ 、 $\text{Gd}$ 、 $\text{Tb}$ 、 $\text{Dy}$ 、 $\text{Ho}$ 、 $\text{Er}$ 、 $\text{Tm}$ 、 $\text{Yb}$  及び  $\text{Lu}$  があり、これらを適宜、単独あるいは組み合わせて用いることができる。

【0009】又、本発明の誘電体磁器組成物は、副成分として、 $\text{CuO}$  を含有していることを特徴とする。

【0010】又、前記 $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$ 系の第1磁器組成物は、 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{ReO}_{3/2}$  (但し、 $x, y, z$ はモル%であり、 $5 \leq x \leq 15$ 、 $52.5 \leq y \leq 70$ 、 $15 \leq z \leq 42.5$ 、 $x+y+z=100$ )で表わされ、該第1磁器組成物100重量部に対して、20重量部以下の $\text{PbO}$ を含有していることを特徴とする。

【0011】そして、前記ガラス組成物に含まれるアルカリ土類酸化物は、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$ 及び $\text{MgO}$ から選ばれる少なくとも1種と、 $\text{BaO}$ からなり、かつこれらの比率は、 $\text{SrO}$ が35重量%以下、 $\text{CaO}$ が35重量%以下、 $\text{MgO}$ が20重量%以下、及び $\text{BaO}$ が40~95重量%の範囲にあることを特徴とする。

【0012】さらに、本発明の誘電体磁器組成物中の前記第1磁器組成物は80~95重量%であり、前記ガラス組成物は5~20重量%であり、前記 $\text{CuO}$ は3重量%以下であることを特徴とする。

【0013】又、本発明の誘電体磁器組成物は、さらに $\text{TiO}_2$ 、 $\text{CaTiO}_3$ 、 $\text{SrTiO}_3$ 及び $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ からなる群より選ばれる少なくとも1種の第2磁器組成物を含有していることを特徴とするこの場合、前記第1磁器組成物は50~95重量%であり、前記ガラス組成物は5~20重量%であり、前記 $\text{CuO}$ は3重量%以下であり、前記第2磁器組成物は30重量%以下であることを特徴とするまた、本発明は、請求項1乃至請求項7に記載の誘電体磁器組成物を誘電体セラミック層として利用することを特徴とするセラミック電子部品を提供するものである。

【0014】このように、 $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$  (但し、 $\text{Re}$ は希土類元素)系の第1磁器組成物と、 $\text{SiO}_2-\text{B}_2\text{O}_3$ -アルカリ土類酸化物- $\text{Li}_2\text{O}$ 系ガラス組成物との混合体で誘電体磁器組成物を構成すると、比抵抗の小さい銀や金あるいは銅のいずれかを主成分とする導体の融点より低い温度で焼結することができる。しかも、高周波域、特にマイクロ波、ミリ波領域において比誘電率が高く、温度安定性に優れた誘電体磁器組成物を得ることができる。

【0015】又、第1磁器組成物とガラス組成物との混合体に副成分として $\text{CuO}$ を添加すれば、さらに焼結温度を下げることができ、 $Q$ 値や比誘電率を高くすることができる。

【0016】したがって、このような誘電体磁器組成物を誘電体セラミック層として利用することにより、金、銀、銅などの比抵抗の小さい内部電極との同時焼成が可能となり、これらの内部電極を内蔵した高周波特性に優れた誘電体や多層回路基板などのセラミック電子部品を得ることが可能となる。又、この誘電体磁器組成物を誘電体セラミック層として利用すれば、積層工法により高 $Q$ 値をもつ $\text{LC}$ 共振器や $\text{LC}$ フィルタなどのセラミック電子部品をさらに小型化することが可能になる。

【0017】なお、本発明において、前記誘電体磁器組成物は、前記第1磁器組成物及び前記ガラス組成物（さらには前記第2磁器組成物）を混合した粉末状組成物、この粉末状組成物を有機ビヒクル等に分散せしめたペースト状組成物、或いは、このペースト状組成物をシート状に成形したセラミックグリーンシート、さらにはこれを焼成してなる磁器組成物を含む。

【0018】

【発明の実施の形態】以下、上記組成範囲の限定理由を説明する。

【0019】図1は、本発明に係る誘電体磁器組成物に用いる第1磁器組成物の主成分である $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$ 系磁器組成物の組成範囲を表わした三元組成図である。この $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{ReO}_{3/2}$ 系磁器組成物の組成比は、 $x\text{BaO}-y\text{TiO}_2-z\text{ReO}_{3/2}$ と表わしたとき、モル%で表わす $x, y, z$ が、 $5 \leq x \leq 15$ 、 $52.5 \leq y \leq 70$ 、 $15 \leq z \leq 42.5$ 、 $x+y+z=100$ となる範囲であって、図1の斜線を施した領域が好ましい。

【0020】これに対して、図1に示すA領域においては、焼結が困難となって、通常焼結に必要な温度である1400℃になっても多孔質の磁器しか得られないことがある。B領域においては、温度特性、すなわち例えば多層回路基板の内部に形成されたキャパシタの誘電率の温度変化率が負側に大きくなりすぎる傾向にある。C領域においては、比誘電率が小さくなりすぎるとともに、焼結性も不安定になることがある。さらに、D領域においては、誘電率温度変化率が正側に大きくなり、比誘電率も下がってくる傾向にある。

【0021】又、誘電体磁器組成物に用いる第1磁器組成物は、図1の斜線を施した組成範囲内にある $\text{BaO}-\text{TiO}_2-\text{NdO}_{3/2}$ 系磁器組成物に、20重量部以下の $\text{PbO}$ が含まれているものが好ましい。 $\text{PbO}$ を添加することによって、より安定した特性を有する誘電体磁器組成物が得られるが、 $\text{PbO}$ を20重量部を超えて添加すると、誘電率温度変化率が負側に大きくなりすぎ、 $Q$ 値が下がってしまうことがある。

【0022】次に、ガラス組成物について述べる。ガラス組成物は、13~50重量%の $\text{SiO}_2$ 、3~30重量%の $\text{B}_2\text{O}_3$ 、40~80重量%のアルカリ土類酸化物( $\text{BaO}$ 、 $\text{SrO}$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ )、0.5~10重量%の $\text{Li}_2\text{O}$ からなる。

【0023】ガラス組成物中、 $\text{B}_2\text{O}_3$ はガラス粘度を低下させる働きを有し、誘電体磁器組成物の焼結を促す。しかし、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 量が30重量%を超えると耐湿性に問題が生じる。一方、3重量%未満では1000℃以下では焼結しない。

【0024】 $\text{SiO}_2$ が50重量%を超えると、ガラスの軟化温度が高くなりすぎ、磁器組成物に含有したとき焼結しない。一方、13重量%未満では耐湿性に問題が

生じる。

【0025】アルカリ土類酸化物は、磁器組成物とガラス組成物との反応を促進させ、ガラス組成物の軟化点を下げる働きがある。アルカリ土類酸化物量が40重量%未満では、焼結性が下がり1000℃以下での焼結が困難になる。一方、80重量%を超えると耐湿性に問題が生ずる。

【0026】又、アルカリ土類酸化物中のBaO量が95重量%を超えると耐湿性に問題が生じ、40重量%未満では焼結性が困難になることがある。又、耐湿性の点から、SrO、CaO、MgOの内少なくとも1つを5重量%以上含むことが好ましい。

【0027】又、Li<sub>2</sub>Oはガラスの軟化点を下げる働きをするが、10重量%を超えると耐湿性に問題が生じる。一方、0.5重量%未満では軟化点が高くなりすぎ焼結しない。

【0028】又、誘電体磁器組成物中のガラス組成物の量が5重量%未満では焼結が困難になることがある。一方、20重量%を超えると、耐湿性が低下し、比誘電率が低下することがある。

【0029】又、CuOも焼結助材として働くが、3重量%を超えると、Q値が低下し、誘電率温度係数が正側に大きくなりすぎる傾向にある。

【0030】又、前記第2磁器組成物であるTiO<sub>2</sub>、CaTiO<sub>3</sub>、SrTiO<sub>3</sub>は、負の誘電率温度係数を有する磁器組成物であり、一方、Nd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>は、正の誘電率温度係数を有する磁器組成物である。すなわち、本発明の誘電体セラミック組成物においては、前記第1磁器組成物及び前記ガラス組成物の混合物に、誘電率の温度特性調整用の添加物として、TiO<sub>2</sub>、CaTiO<sub>3</sub>、SrTiO<sub>3</sub>及びNd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>からなる群より選ばれた少なくとも1種の第2磁器組成物を適量含有させることによって、本発明の誘電体磁器組成物の温度特性を所望の値に設定できる。

【0031】なお、本発明の誘電体磁器組成物に前記第2磁器組成物を含有させる場合、前記第1磁器組成物は50～95重量%であり、前記ガラス組成物は5～20重量%であり、前記CuOは3重量%以下であり、前記第2磁器組成物は30重量%以下であることが好ましい。前記第2磁器組成物の含有量が30重量%を超えると、本発明の誘電体磁器組成物の焼結性が劣化する傾向にある。また、前記第1磁器組成物は50～95重量%とすることが望ましく、前記第1磁器組成物の含有量が50重量%未満であると、磁器組成物の焼結性が低下する（又はガラス組成物の含有量が20重量%を超えた場合は誘電率が低下する）傾向にあり、前記第1磁器組成物の含有量が95重量%を超えると、同様に、磁器組成物の焼結性が低下することがある。

【0032】次に、図2～図4を参照に本発明のセラミック電子部品の一例として、LCフィルタを説明する。

【0033】まず、本発明の誘電体磁器組成物の構成に準じた粉末状組成物に有機ビニルを添加してペースト状組成物を調製し、ドクターブレードを用いたキャスト法等に従って例えば40μm厚のセラミックグリーンシートを作製する。次いで、これを乾燥した後、所定の大きさのセラミックグリーンシートに打ち抜く。

【0034】次いで、図2に示すように、得られたセラミックグリーンシート13に、必要に応じて、銀ペースト等を用いてビアホール14を形成し、引き続いて、銀ペースト等を用いてコンデンサパターン15、コイルパターン16をスクリーン印刷した後、積層、圧着して積層体を形成する。

【0035】そして、この積層体を例えば900℃で焼成した後、図3に示すように、外部電極17、18、19及び20を形成して、内部にコンデンサC1、コイルL1及びL2を有するLCフィルタ10を作製する。なお、このLCフィルタ10は、図4に示すような等価回路を有している。

【0036】このLCフィルタ10は、本発明の誘電体磁器組成物を誘電体セラミック層として利用しているもので、比抵抗の小さい銀、銅、金等の低融点金属を主成分とする導体材料を内層導体として用いて同時焼成することができ、しかもマイクロ波やミリ波領域における高周波特性や温度安定性に優れている上、十分に小型化できる。

【0037】なお、本発明のセラミック電子部品は、図2～図4に示したLCフィルタに限定されるものではなく、例えば、LC共振器、積層チップコンデンサ、チップアンテナ等のチップ部品や、ハイブリッドIC用のセラミック基板、VCO用のセラミック基板、マルチチップモジュール用のセラミック基板、セラミックパッケージ等のセラミック基板（又はセラミック多層基板）に適用することができる。

【0038】また、本発明のセラミック電子部品は、本発明の誘電体磁器組成物をグリーンシートに形成してから積層、焼成して作製する方法の他、本発明の誘電体セラミック組成物をペースト状組成物として、これを厚膜印刷によって形成してもよい。

【0039】

【実施例】以下、本発明の誘電体磁器組成物を実施例に基づき説明する。

【0040】（第1磁器組成物の作製）まず、BaOとTiO<sub>2</sub>とReO<sub>3/2</sub>（希土類酸化物）のモル比が表1の主成分の欄に示すような組成比となるようにBaCO<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Pr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を秤量混合した。次に、PbOの粉末を表1の副成分の欄に示す組成比（主成分100重量部に対する重量部）になるように前記混合物中に添加し、十分に混合した後、1150℃で1時間仮焼した。次いで、この仮焼物を粉砕して混合した後、1300～1400℃で焼成

して磁器を得た。この磁器を再び粉碎して、表 1 に示す第 1 磁器組成物 S 1 ～ S 2 5 を作製した。なお、得られた磁器について、比誘電率、Q 及び誘電率温度変化率を測定した。測定結果を表 1 に示す。そして、これら第 1 \*

\* 磁器組成物を、以下に示す誘電体磁器組成物の調整に用いた。

【 0 0 4 1 】

【表 1】

第 1 磁器組成物 No.	主成分 (wt%)			副成分 (重量部)	比誘電率 $\epsilon$	Q 値 at 1GHz	温度変化率 (ppm/°C)
	BaO	TiO <sub>2</sub>	ReO <sub>3/2</sub>	PbO			
S1	10	63	Nd:27	13	95	5000	-5
S2	15	70	Nd:15	13	85	2500	-80
S3	15	55	Nd:30	13	80	3000	-100
S4	5	70	Nd:25	13	65	4000	-70
S5	5	55	Nd:40	13	54	2200	+20
S6	20	60	Nd:20	13	105	3500	-100
S7	10	75	Nd:15	13	72	3000	-120
S8	2	65	Nd:33	13	50	2500	+10
S9	10	50	Nd:40	13	47	2400	+50
S10	10	63	Nd:27	0	65	3500	+30
S11	10	63	Nd:27	3	80	4000	+30
S12	10	63	Nd:27	20	100	5000	-30
S13	10	63	Nd:27	25	90	900	-100
S14	13	65	Nd:22	0	69	3400	-20
S15	13	60	Nd:27	0	60	3600	+20
S16	20	60	Nd:20	0	75	2000	-100
S17	2	65	Nd:33	0	35	2500	+40
S18	10	63	La:27	13	100	4000	-20
S19	10	63	Pr:27	13	97	4500	-15
S20	10	63	Sm:27	13	92	5000	0
S21	10	63	27 (La/Nd=0.5/0.5)	13	97	5000	-10
S22	10	63	27 (Pr/Nd=0.25/0.75)	13	96	5000	-10
S23	13	65	22 (Pr/Nd=0.25/0.75)	13	101	4000	-10
S24	13	65	22 (Pr/Nd=0.5/0.5)	13	100	4500	-5
S25	10	63	27 (Sm/Nd=0.5/0.5)	13	94	5000	-5
S26	10	45	Nd:45	13	43	2000	+60
S27	10	63	27 (Pr/Nd=0.5/0.5)	13	100	4500	-5

【 0 0 4 2 】 (ガラス組成物の作製) 表 2 に示す組成比となるように、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>、BaO、SrO、CaO、MgO、Li<sub>2</sub>O をそれぞれ秤量し十分混合した後、1100℃～1400℃の温度で熔融し、水中へ投

入して急冷後、湿式粉碎してガラス組成物 G 1 ～ G 3 1 をそれぞれ作製した。

【 0 0 4 3 】

【表 2】

ガラス組成物 No.	アルカリ土類酸化物 RO					B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (wt%)	SiO <sub>2</sub> (wt%)	Li <sub>2</sub> O (wt%)
	RO 総量	RO 中の各成分の比率(wt%)						
		BaO	SrO	CaO	MgO			
G1	61	82	11	5	2	14	23	2
G2	30	82	11	5	2	29	39	2
G3	40	82	11	5	2	25	33	2
G4	80	82	11	5	2	5	13	2
G5	90	82	11	5	2	3	5	2
G6	67	82	11	5	2	1	30	2
G7	66	82	11	5	2	3	29	2
G8	50	82	11	5	2	30	18	2
G9	44	82	11	5	2	40	14	2
G10	70	82	11	5	2	20	8	2
G11	68	82	11	5	2	17	13	2
G12	40	82	11	5	2	8	50	2
G13	30	82	11	5	2	8	60	2
G14	63	82	11	5	2	14	23	0
G15	62.5	82	11	5	2	14	23	0.5
G16	62	82	11	5	2	14	23	1
G17	57	82	11	5	2	12	21	10
G18	55	82	11	5	2	11	19	15
G19	61	30	35	25	10	14	23	2
G20	61	40	33	24	3	14	23	2
G21	61	95	2	2	1	14	23	2
G22	61	100	0	0	0	14	23	2
G23	61	85	0	13	2	14	23	2
G24	61	45	35	18	2	14	23	2
G25	61	40	45	13	2	14	23	2
G26	61	85	13	0	2	14	23	2
G27	61	50	12	35	2	14	23	2
G28	61	40	13	45	2	14	23	2
G29	61	83	12	5	0	14	23	2
G30	61	80	15	5	20	14	23	2
G31	61	55	15	5	25	14	23	2

#### 【0044】誘電体磁器組成物の作製

まず、第1磁器組成物とガラス組成物と（さらにはCuOと）の混合体からなる誘電体磁器組成物を作製、評価 30  
する。

【0045】上述のようにして得られた第1磁器組成物 S1～S25に、表3～表5に示す組成比となるようにそれぞれG1～G31のガラス組成物を加え、この第1磁器組成物とガラス組成物との混合物に、副成分として表3～表5に示す割合となるようにCuO粉末を加えて十分に混合した。その後、これら混合原料に対して適量のバインダ、可塑材、溶剤を加え、混練してスラリーを得た。

【0046】このようにして得られたスラリーをドクタ 40

ーブレード法により厚さ50μmのシート状に成形し、得られたセラミックグリーンシートを縦30mm横10mmの大きさにカットし、積層し、0.5mmの厚さに圧着した。その後、N<sub>2</sub>中、1000℃の温度で1時間焼成し、表3～表5に示す試料No. 1～67の板状の誘電体磁器を得た。

【0047】以上のようにして得られた誘電体磁器について、比誘電率(ε)、Q値、誘電率温度変化率(ppm/℃)の各特性について測定した。なお、比誘電率は1MHzで測定した。以上の結果を表3～表5に示す。

【0048】

【表3】

\*印は本発明の範囲外

試料 No	第1磁器 組成物		第2磁器 組成物		CuO 量 (wt%)	焼成 温度 (°C)	比誘 電率 (ε)	Q値	温度 変化率 (ppm/°C)	備考
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)						
1	S1	90	G1	10	0	1000	60	2500	0	
2	S1	90	G4	10	0	1000	62	2000	-20	
3	S1	88	G4	12	0	1000	63	2000	-30	
*4	S1	88.5	G2	10	1.5	1000	-	-	-	未焼結
5	S1	88.5	G3	10	1.5	1000	65	4000	-20	
6	S1	88.5	G4	10	1.5	1000	77	3500	-30	
*7	S1	88.5	G5	10	1.5	1000	78	3000	-40	耐湿不良
*8	S1	88.5	G6	10	1.5	1000	-	-	-	未焼結
9	S1	88.5	G7	10	1.5	1000	70	4500	-10	
10	S1	88.5	G8	10	1.5	1000	75	3000	-15	
*11	S1	88.5	G9	10	1.5	1000	75	3000	-30	耐湿不良
*12	S1	88.5	G10	10	1.5	1000	80	2500	-20	耐湿不良
13	S1	88.5	G11	10	1.5	1000	77	3000	-15	
14	S1	88.5	G12	10	1.5	1000	73	3500	-5	
*15	S1	88.5	G13	10	1.5	1000	-	-	-	未焼結
*16	S1	88.5	G14	10	1.5	1000	-	-	-	未焼結
17	S1	88.5	G15	10	1.5	1000	70	2500	+10	
18	S1	88.5	G16	10	1.5	1000	72	4500	0	
19	S1	88.5	G17	10	1.5	1000	77	3000	-30	
*20	S1	88.5	G18	10	1.5	1000	78	2500	-30	耐湿不良
21	S14	88.5	G1	10	1.5	1000	53	3000	-25	
22	S15	88.5	G1	10	1.5	1000	48	3100	+15	
23	S16	88.5	G1	10	1.5	1000	60	1700	-120	
24	S17	88.5	G1	10	1.5	1000	27	1500	+35	

【0049】

\* \* 【表4】

試料 No	第1磁器 組成物		第2磁器 組成物		CuO 量 (wt%)	焼成 温度 (°C)	比誘 電率 (ε)	Q値	温度 変化率 (ppm/°C)	備考
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)						
25	S1	88.5	G1	10	1.5	1000	75	4000	-10	
26	S2	88.5	G1	10	1.5	1000	65	2000	-50	
27	S3	88.5	G1	10	1.5	1000	60	2300	-70	
28	S4	88.5	G1	10	1.5	1000	55	3000	-70	
29	S5	88.5	G1	10	1.5	1000	50	2000	0	
30	S6	88.5	G1	10	1.5	1000	80	2500	-120	
31	S7	88.5	G1	10	1.5	1000	55	2000	-150	
32	S8	88.5	G1	10	1.5	1000	35	1500	-10	
33	S9	88.5	G1	10	1.5	1000	30	1500	+20	
34	S10	88.5	G1	10	1.5	1000	50	3000	0	
35	S11	88.5	G1	10	1.5	1000	65	4000	+10	
36	S12	88.5	G1	10	1.5	1000	80	2000	-20	
37	S13	88.5	G1	10	1.5	1000	70	1000	-150	
38	S1	88.5	G19	10	1.5	1000	-	-	-	焼結不十分
39	S1	88.5	G20	10	1.5	1000	67	4000	+10	
40	S1	88.5	G21	10	1.5	1000	77	4000	-20	
41	S1	88.5	G22	10	1.5	1000	78	3700	-25	耐湿不十分
42	S1	88.5	G23	10	1.5	1000	76	4000	-15	
43	S1	88.5	G24	10	1.5	1000	67	3500	+5	
44	S1	88.5	G25	10	1.5	1000	-	-	-	焼結不十分
45	S1	88.5	G26	10	1.5	1000	75	4200	-10	
46	S1	88.5	G27	10	1.5	1000	65	4000	+10	
47	S1	88.5	G28	10	1.5	1000	-	-	-	焼結不十分
48	S1	88.5	G29	10	1.5	1000	77	4000	-5	
49	S1	88.5	G30	10	1.5	1000	60	4000	-10	
50	S1	88.5	G31	10	1.5	1000	-	-	-	焼結不十分

【0050】

【表5】

試料 No	第1磁器 組成物		ガラス 組成物		CuO 量 (wt%)	焼成 温度 (°C)	比誘 電率 (ε)	Q値	温度 変化率 (ppm/°C)	備考
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)						
51	S1	89.8	G1	10	0.2	1000	70	4000	-5	
52	S1	87	G1	10	3.0	1000	78	3000	-20	
53	S1	87	G1	10	5.0	1000	85	100	+200	
54	S1	95.5	G1	3	1.5	1000	-	-	-	焼結不十分
55	S1	93.5	G1	5	1.5	1000	70	5000	-10	
56	S1	78.5	G1	20	1.5	1000	50	1500	+20	
57	S1	68.5	G1	30	1.5	1000	40	800	+40	耐湿不十分
58	S1	87.5	G12	12	0.5	1000	64	4000	-10	
59	S1	87.0	G16	12	1.0	1000	70	3000	-20	
60	S18	88.5	G1	10	1.5	1000	78	3500	-30	
61	S19	88.5	G1	10	1.5	1000	76	4000	-20	
62	S20	88.5	G1	10	1.5	1000	73	4500	-5	
63	S21	88.5	G1	10	1.5	1000	76	4500	-20	
64	S22	88.5	G1	10	1.5	1000	75	4500	-25	
65	S23	88.5	G1	10	1.5	1000	80	3500	-20	
66	S24	88.5	G1	10	1.5	1000	79	4000	-15	
67	S25	88.5	G1	10	1.5	1000	74	4000	-10	

【0051】表3、表4及び表5から明らかなように、 $\text{BaO-TiO}_2\text{-ReO}_{3/2}$  (但し、Reは希土類元素)系の第1磁器組成物とガラス組成物の混合物からなり、このガラス組成物が13～50重量%の $\text{SiO}_2$ 、3～30重量%の $\text{B}_2\text{O}_3$ 、40～80重量%のアルカリ土類酸化物、及び0.5～10重量%の $\text{Li}_2\text{O}$ からなる誘電体磁器組成物は、試料No. 1～24のグループ中の試料No. 1～3に示すように、比誘電率が高く、Qが高く、誘電率温度変化率が小さいという優れた特性を有し、しかも1000℃以下の低い焼成温度で得ることができる。

【0052】又、さらに副成分としてCuOを含有した誘電体磁器組成物は、試料No. 1～24のグループ中の試料No. 5、6、9、10、13、14、17～19、21～24に示すように、比誘電率とQがさらに高く、誘電率温度変化率が小さいという優れた特性を有し、しかも1000℃以下の低い焼成温度でより一層安定して得ることができる。すなわち、CuO含有の効果は、試料No. 1、51～53間の比較でわかる通り、Q値や比誘電率を高めることができ、さらに具体的データは示していないが焼結温度を下げるができる。

【0053】これに対して、上記組成範囲をはずれる誘電体磁器組成物は、試料No. 1～24のグループ中の試料No. 4、7、8、11、12、15、16、20に示すように、1000℃では焼結しないか、焼結の程度が不十分で耐湿不良が発生する。

【0054】又、 $\text{BaO-TiO}_2\text{-ReO}_{3/2}$ 系の第1磁器組成物の組成範囲を、 $x\text{BaO-yTiO}_2\text{-zReO}_{3/2}$  (但し、x、y、zはモル%であり、 $5 \leq x \leq 15$ 、 $52.5 \leq y \leq 70$ 、 $15 \leq z \leq 42.5$ 、 $x+y+z=100$ )とし、さらにこの第1磁器組成物100重量部に対して、20重量部以下のPbOを含有することにより、試料No. 25～37のグループ中の試料

No. 25～29、35、36に示すように、誘電率温度変化率がさらに小さい誘電体磁器組成物が得られる。

【0055】又、ガラス組成物に含まれるアルカリ土類酸化物としては、その種類をSrO、CaO及びMgOから選ばれる少なくとも1種と、BaOとし、かつこれらの比率を、SrOが35重量%以下、CaOが35重量%以下、MgOが20重量%以下、及びBaOが40～95重量%の範囲内とすることが、試料No. 38～50のグループ中の試料No. 39、40、42、43、45、46、48、49に示すように好ましい。

【0056】又、第1磁器組成物とガラス組成物とCuOの比率は、第1磁器組成物が80～95重量%であり、ガラス組成物が5～20重量%であり、CuOが3重量%以下であることが、試料No. 51～59のグループ中の試料No. 51、52、55、58、59に示すように好ましい。なお、副成分として含有するCuOは、上記実施例のように、第1磁器組成物とガラス組成物との混合物にCuO粉末を加えて混合する方法以外に、あらかじめCuOを含むガラス組成物を作製しておき、このガラス組成物と第1磁器組成物を混合するようにしても同様の効果が得られる。

【0057】さらに、試料No. 60～67のグループに示すように、 $\text{BaO-TiO}_2\text{-ReO}_{3/2}$ の第1磁器組成物中のRe、すなわち希土類元素として、Nd以外に、La、Pr又はSmを用いた場合にも、比誘電率が高く、Q値が高く、誘電率温度変化率が小さいという優れた特性の誘電体磁器組成物を、1000℃以下の低い焼成温度で得ることができる。したがって、希土類元素Reとしては、Sc、Y、La、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb及びLuのうちいずれかを適宜、単独あるいは組み合わせて用いることができる。

【0058】次に、第1磁器組成物とガラス組成物と第

2磁器組成物と（さらにはCuO）の混合体からなる誘電体磁器組成物を作製、評価する。

【0059】表1に示した第1磁器組成物と表2に示したガラス組成物とを用い、これに適当量のCuO粉末を加えた。次いで、第1磁器組成物とガラス組成物との混合物に対して、表6～表11に示す割合となるように、第2磁器組成物であるTiO<sub>2</sub>、CaTiO<sub>3</sub>、SrTiO<sub>3</sub>、Nd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>を加えて十分に混合した後、調合した。さらにこれらの混合材料に対して適当量のバインダ、可塑材、溶剤等の有機ビヒクルを加え、混練してスラリーを得た。

【0060】こうして得たスラリーをドクターブレード\*

\*法により厚さ50μmのシート状に成形し、成形されたセラミックグリーンシートを縦30mm横10mmの大きさにカットして、0.5mmの厚さとなるように積層、圧着した。この後、大気中、1000℃以下の温度で1時間焼成し、表6～表11に示す資料No.68～132の誘電体磁器を得た。

【0061】以上のようにして得られた誘電体磁器について、比誘電率(ε)、Q、誘電率温度変化率(ppm/℃)の各特性について測定した。なお、比誘電率は1MHzで測定した。以上の結果を表6～表11に示す。

【0062】

【表6A】

試料 No.	第1磁器組成物		ガラス組成物		第2磁器組成物		CuO (wt%)
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)	種類	量 (wt%)	
68	S1	95.5	G1	3.5	TiO <sub>2</sub>	0.5	0.5
69	S1	94.0	G1	5	TiO <sub>2</sub>	0.5	0.5
70	S1	88.5	G1	20	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
71	S1	58.5	G1	30	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
72	S1	80	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	0
73	S1	77.0	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	3.0
74	S1	75.0	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	5.0
75	S1	86.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	2	1.5
76	S1	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
77	S1	58.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	30	1.5
78	S1	48.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	40	1.5
79	S1	86.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	2	1.5
80	S1	58.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	30	1.5
81	S1	48.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	40	1.5
82	S1	86.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	2	1.5
83	S1	58.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	30	1.5
84	S1	48.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	40	1.5
85	S1	78.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub> /TiO <sub>2</sub>	5/5	1.5
86	S1	48.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub> /TiO <sub>2</sub>	20/20	1.5
87	S1	83.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	5	1.5

【0063】

【表6B】

試料 No.	第 1 磁器組成物		ガラス組成物		第 2 磁器組成物		CuO (wt%)
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)	種類	量 (wt%)	
88	S1	78.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	10	1.5
89	S1	58.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	30	1.5
90	S1	48.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	40	1.5
91	S1	58.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	30	1.5
92	S1	48.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	40	1.5
93	S1	86.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	2	1.5
94	S1	58.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	30	1.5
95	S1	48.5	G1	10	CaTiO <sub>3</sub>	40	1.5
96	S1	86.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	2	1.5
97	S1	58.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	30	1.5
98	S1	48.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub>	40	1.5
99	S1	78.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub> /TiO <sub>2</sub>	5/5	1.5
100	S1	48.5	G1	10	SrTiO <sub>3</sub> /TiO <sub>2</sub>	20/20	1.5
101	S1	83.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	5	1.5
102	S1	78.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	10	1.5
103	S1	58.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	30	1.5
104	S1	48.5	G1	10	Nd <sub>2</sub> Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	40	1.5

【0064】

\* \* 【表 7 A】

試料 No.	焼成温度 (°C)	比誘電率 $\epsilon$	Q 値	温度変化率 (ppm/°C)	備考
68	1000	-	-	-	焼結不十分
69	1000	83	5000	-60	
70	1000	53	1600	-80	
71	1000	45	1000	-60	$\epsilon$ 低い
72	1000	75	2800	-50	
73	1000	80	3500	-60	
74	1000	110	200	+150	Q 値低い
75	1000	76	4000	-20	
76	1000	78	4100	-50	
77	1000	86	2700	-120	
78	1000	-	-	-	焼結不十分
79	1000	78	3800	-30	
80	1000	90	2500	-180	
81	1000	-	-	-	焼結不十分
82	1000	79	3500	-40	
83	1000	120	2000	-250	
84	1000	-	-	-	焼結不十分
85	1000	95	2500	-100	
86	1000	-	-	-	焼結不十分
87	1000	73	3500	0	

【0065】

【表 7 B】

試料 No.	焼成温度 (°C)	比誘電率 $\epsilon$	Q値	温度変化率 (ppm/°C)	備考
88	1000	71	3000	+10	
89	1000	62	2000	+30	
90	1000	-	-	-	焼結不十分
91	1000	86	2700	-120	
92	1000	-	-	-	焼結不十分
93	1000	78	3800	-30	
94	1000	90	2500	-180	
95	1000	-	-	-	焼結不十分
96	1000	79	3500	-40	
97	1000	120	2000	-250	
98	1000	-	-	-	焼結不十分
99	1000	95	2600	-100	
100	1000	-	-	-	焼結不十分
101	1000	73	3500	0	
102	1000	71	3000	+10	
103	1000	62	2000	+30	
104	1000	-	-	-	焼結不十分

【0066】

\* \* 【表 8】

試料 No.	第 1 磁器組成物		ガラス組成物		第 2 磁器組成物		CuO (wt%)
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)	種類	量 (wt%)	
105	S2	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
106	S3	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
107	S4	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
108	S5	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
109	S6	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
110	S7	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
111	S8	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
112	S26	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
113	S10	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
114	S11	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
115	S12	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
116	S13	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
117	S19	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
118	S20	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
119	S27	78.5	G1	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5

【0067】

※ ※ 【表 9】

試料 No.	焼成温度 (°C)	比誘電率 $\epsilon_r$	Q値	温度変化率 (ppm/°C)	備考
105	1000	68	1500	-120	
106	1000	64	2000	-150	
107	1000	53	2800	-120	
108	1000	45	1200	-30	
109	1000	90	2500	-160	
110	1000	58	2000	-180	
111	1000	37	900	-40	Q値低い
112	1000	30	900	0	Q値低い
113	1000	50	2500	-10	
114	1000	65	2800	0	
115	1000	85	3000	-75	
116	1000	75	500	-150	Q値低い
117	1000	80	3500	-60	
118	1000	76	3800	-40	
119	1000	82	3500	-45	

【0068】

\* \* 【表10】

試料 No.	第1磁器組成物		ガラス組成物		第2磁器組成物		CuO (wt%)
	No.	量 (wt%)	No.	量 (wt%)	種類	量 (wt%)	
120	S1	78.5	G2	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
121	S1	78.5	G3	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
122	S1	78.5	G4	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
123	S1	78.5	G5	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
124	S1	78.5	G6	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
125	S1	78.5	G8	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
126	S1	78.5	G9	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
127	S1	78.5	G12	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
128	S1	78.5	G13	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
129	S1	78.5	G14	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
130	S1	78.5	G15	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
131	S1	78.5	G17	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5
132	S1	78.5	G18	10	TiO <sub>2</sub>	10	1.5

【0069】

※ ※ 【表11】

試料 No.	焼成温度 (°C)	比誘電率 ε	Q値	温度変化率 (ppm/°C)	備考
120	1000	-	-	-	未焼結
121	1000	75	3500	-50	
122	1000	80	3700	-53	
123	1000	81	3800	-54	耐湿性不可
124	1000	-	-	-	未焼結
125	1000	80	3700	-50	
126	1000	81	3800	-52	耐湿性不可
127	1000	73	3300	-45	
128	1000	-	-	-	未焼結
129	1000	-	-	-	未焼結
130	1000	70	2500	-40	
131	1000	81	2000	-50	
132	1000	82	1700	-54	耐湿性不可

【0070】表6～表11から明らかなように、BaO-TiO<sub>2</sub>-ReO<sub>3/2</sub>（但し、Reは希土類元素）系の第1磁器組成物とガラス組成物の混合体からなり、該ガラス組成物は13～50重量%のSiO<sub>2</sub>、3～30重量%のB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、40～80重量%のアルカリ土類酸化物、及び0.5～10重量%のLi<sub>2</sub>Oからなる誘電体磁器組成物に、さらに、TiO<sub>2</sub>、CaTiO<sub>3</sub>、SrTiO<sub>3</sub>及びNd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>からなる群より選ばれた少なくとも1種の第2磁器組成物を含有していると、より効果的に誘電体磁器組成物の温度特性を所望の値に設定できることが分かる。すなわち、副成分として誘電率の負の温度特性をもつTiO<sub>2</sub>、CaTiO<sub>3</sub>、SrTiO<sub>3</sub>、または正の温度特性を持つNd<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>を所定量含むことにより、目的とする温度特性に磁器組成物を調節することが可能である。

【0071】これに対して、試料No. 120のように、ガラス組成物中のアルカリ土類酸化物の割合が少なすぎると誘電体磁器組成物は1000℃では焼結せず、また、試料No. 123のように、アルカリ土類酸化物

の割合が多く、SiO<sub>2</sub>の割合が少なすぎると、耐湿性を満足しない。また、試料No. 124のように、ガラス組成物中のB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が少なすぎると誘電体磁器組成物は1000℃では焼結せず、また、試料No. 126のように、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が多すぎると耐湿性を満足しない。さらに、試料No. 128のように、ガラス組成物中のアルカリ土類酸化物の割合が少なく、SiO<sub>2</sub>の割合が多すぎると誘電体磁器組成物は1000℃では焼結しない。また、試料No. 129のようにガラス組成物中にLi<sub>2</sub>Oが所定量含まれていないと誘電体磁器組成物は焼結せず、他方、試料No. 132のようにLi<sub>2</sub>Oが多すぎると耐湿性を満足しない。

【0072】さらに、試料No. 68のように、誘電体磁器組成物中の第1磁器組成物の割合が多く、ガラス組成物の割合が少ないと、誘電体磁器組成物の焼結性が低下する傾向にある。また、試料No. 71のように、ガラス組成物の割合が多すぎると誘電率が低下する傾向にある。また、試料No. 74のように、誘電体磁器組成物中のCuOの割合が多すぎるとQ値が低くなる傾向に

ある。

【0073】また、試料No. 81、84、86、90、92、95、98、100及び104のように、誘電体磁器組成物中の第1磁器組成物の割合が少なく、第2磁器組成物の割合が多すぎる場合は、誘電体磁器組成物の焼結性が低下する傾向にあることが分かる。

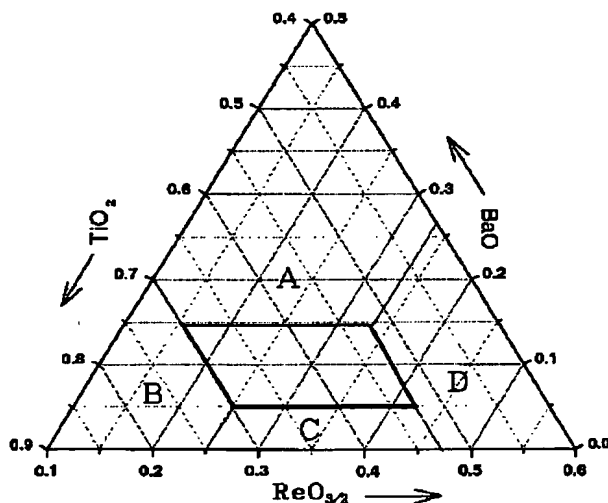
【0074】さらに、試料No. 109、110のように、第1磁器組成物の組成範囲が図1に示すA領域やB領域にあると、温度変化率が大きくなる傾向にあることが分かる。また、例示しないが、A領域では、焼結が困難となって多孔質の磁器が生成してしまうことがあった。また、試料No. 111、112のように、第1磁器組成物の組成範囲が図1に示すC領域、D領域にあると、比誘電率が低下する傾向にあった。また、第1磁器組成物におけるPbOの割合が多すぎると、試料No. 116に示すように、比誘電率が低下する傾向にあった。

【0075】なお、各表において、「未焼結」とは、所定の焼成温度では焼成することが全く不可能であることを意味し、「焼結不十分」とは、上記の条件では焼成が不十分であるが、条件次第で十分に焼成可能であることを意味する。さらに、「耐湿不良」とは、誘電体磁器組成物の耐湿性が極めて問題となるような程度であり、「耐湿不十分」とは、環境条件次第では十分な耐湿性を有していることを意味する。

【0076】

【発明の効果】以上の説明で明らかなように、本発明に

【図1】



よれば、比抵抗の小さい金や銀あるいは銅のいずれかを主成分とする導体の融点よりも低い温度で焼結する誘電体磁器組成物を得ることができる。しかも、高周波域、特にマイクロ波、ミリ波領域において比誘電率が高く、温度安定性に優れた誘電体磁器組成物を得ることができる。

【0077】従って、本発明の誘電体磁器組成物を用いることにより、金や銀、銅などの比抵抗の低い内部電極と同時焼成が可能となり、これらの電極を内蔵した高周波特性に優れた誘電体や多層回路基板等のセラミック電子部品を得ることが可能になる。又、この誘電体磁器組成物を用いれば、積層工法により高誘電率、高Q値を持つLC共振器やLCフィルタなどのセラミック電子部品をさらに小型化することが可能になる。

【図面の簡単な説明】

【図1】BaO-TiO<sub>2</sub>-ReO<sub>3/2</sub>系の磁器組成物の三元組成図である。

【図2】本発明のセラミック電子部品によるLCフィルタの分解斜視図である。

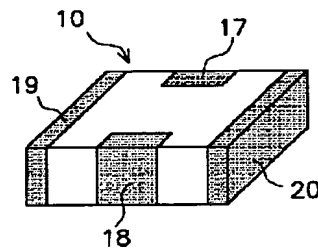
20 【図3】同、LCフィルタの概略斜視図である。

【図4】同、LCフィルタの回路図である。

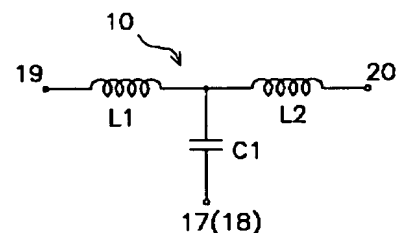
【符号の説明】

- 10…LCフィルタ、
- 13…セラミックグリーンシート、
- 14…ビアホール、
- 15…コンデンサパターン、
- 16…コイルパターン

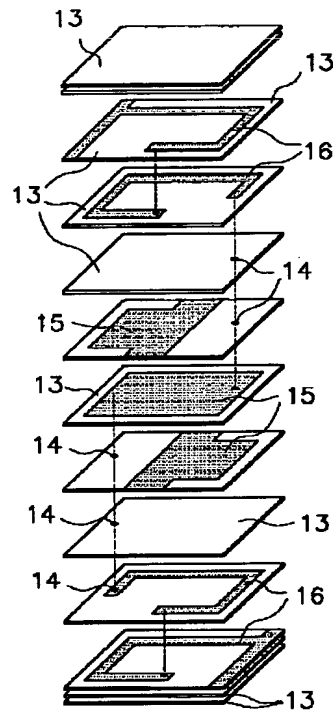
【図3】



【図4】



【図 2】



---

フロントページの続き

(72) 発明者 鷹木 洋

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式  
会社村田製作所内